

①⑨ RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
—  
INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
—  
PARIS  
—

①① N° de publication :

**2 841 481**

(à n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction)

②① N° d'enregistrement national :

**02 08181**

⑤① Int Cl<sup>7</sup> : B 01 D 1/18, A 23 N 1/00, A 23 P 1/04

⑫

## BREVET D'INVENTION

**B1**

⑤④ "PROCÉDE DE TRAITEMENT D'UN EXTRAIT AQUEUX D'ORIGINE VÉGÉTALE ADDITIONNÉ DE BIOPOLYMERÉ ET POUDRE D'ATOMISATION OBTENUE".

②② Date de dépôt : 01.07.02.

③③ Priorité :

⑥⑥ Références à d'autres documents nationaux  
apparentés :

⑦① Demandeur(s) : *CENTRE DE COOPERATION  
INTERNATIONALE EN RECHERCHE  
AGRONOMIQUE POUR LE DEVELOPPEMENT  
Etablissement public à caractère industriel et  
commercial — FR.*

④③ Date de mise à la disposition du public  
de la demande : 02.01.04 Bulletin 04/01.

④⑤ Date de la mise à disposition du public du  
brevet d'invention : 29.04.05 Bulletin 05/17.

⑦② Inventeur(s) : GRAILLE JEAN, PINA MICHEL,  
GUYOT BERNARD et FIGUEROA ESPINOZA MARIA  
CRUZ.

⑤⑥ Liste des documents cités dans le rapport de  
recherche :

⑦③ Titulaire(s) :

*Se reporter à la fin du présent fascicule*

⑦④ Mandataire(s) : BEAU DE LOMENIE.

**FR 2 841 481 - B1**



PROCEDE DE TRAITEMENT D'UN EXTRAIT AQUEUX D'ORIGINE VEGETALE  
ADDITIONNNE DE BIOPOLYMERE ET POUDRE D'ATOMISATION OBTENUE

La présente invention concerne un procédé de traitement d'un extrait aqueux d'origine végétale contenant des substances organiques d'intérêt. Plus particulièrement, la présente invention concerne le traitement des eaux de végétation générées par la transformation des fruits oléagineux ou non. Plus particulièrement encore, la présente invention concerne le traitement des margines issues des eaux de végétation de l'olive.

Les margines constituent un co-produit de l'huilerie d'olive issu des eaux de végétation des olives additionnées d'une quantité d'eau potable. La teneur en eau des olives arrivées à maturité est de l'ordre de 50%. Si l'on considère que la quantité d'eau additionnée est de l'ordre de 50 kg pour 100 kg d'olives, la quantité de margines est de l'ordre de 70 kg. Le déficit apparent en eau s'explique par la forte rétention d'eau par les grignons. Les grignons sont eux-mêmes constitués des débris solides issus du broyage des olives ; ils sont composés de débris de noyaux et de tissus divers représentant environ 30% de la matière sèche des olives mais se retrouvent hydratés à près de 100%, ce qui conduit à 60 kg de grignons humides environ.

Le tableau 1 ci-après donne la composition moyenne des olives et le tableau 2 ci-après donne la composition moyenne des margines.

Tableau 1 :

<i>CONSTITUTION DES OLIVES</i>	
% en poids	
Eau	50
Noyaux	28
Huile	22

Tableau 2 :

<i>COMPOSITION DES MARGINES</i>	
% en poids	
Eau	86
Matière organique	12
Matière minérale	2
<div style="display: flex; align-items: center; justify-content: center;"> <div style="margin-right: 10px;">→</div> <div style="display: flex; align-items: center;"> <div style="font-size: 3em; margin-right: 10px;">{</div> <div style="display: flex; flex-direction: column; align-items: center;"> <div>Lipides</div> <div>Matières azotées</div> <div>Sucres</div> <div>Acides organiques</div> <div>Polyphénols</div> </div> <div style="display: flex; flex-direction: column; align-items: center;"> <div>1</div> <div>3</div> <div>5</div> <div>1,5</div> <div>1,5</div> </div> </div> <div style="margin-left: 10px;">}</div> <div style="margin-left: 10px;">% en poids/MS</div> </div>	

Traditionnellement, les margines étaient épandues dans le sol. Mais ces épandages sont considérés désormais comme une source de pollution importante et ne sont plus autorisés.

5 C'est pourquoi depuis plus de 50 ans, de nombreuses solutions ont été proposées pour se débarrasser totalement et astucieusement des margines. Malheureusement aucune solution à ce jour n'a donné satisfaction compte tenu du coût qu'elle représente.

10 On peut citer par exemple l'utilisation des margines comme milieu de culture de micro-organisme pour la fabrication d'enzymes pectinolytiques avec la souche *Cryptococcus albidus* (Hamdi M. "Industrial microbiology is useful in the re-use and treatment of olive mill wastewater", *Olivae*, 1993, 46, 20-25) ou comme milieu de culture pour la production de protéines d'organismes unicellulaires comme celles de *Torulopsis utilis* (Carola C., By-products, In *Olive Oil Technology*, JM Moreno Martinez, ed. FAO Rome, 1975, 77-87).

Pour la culture des levures il est nécessaire d'ajouter une source d'azote comme l'ammonium sulfate.

15 On a aussi proposé l'utilisation des margines comme engrais pour les oliveraies mais cela pose semble-t-il des problèmes agronomiques, des risques de pollution et des modifications mécano-physicochimiques des sols (Ranalli A. "The effluent from olive mills: proposals for re-use and purification with reference to Italian legislation. Part I", *Olivae*, 1991, 37, 30-35 ; Paredes M.J., Moreno A., Cormenzance R. et Martinez J. "Characteristic of soil  
20 after pollution with waste waters from olive oil extraction plants" *Chemosphere*, 1987, 16, 1557-1563).

25 On peut citer enfin l'introduction des margines dans un foyer de chaudière adaptée pour la production de vapeur ; les matières organiques fournissent un peu d'énergie mais les matières minérales obligent à utiliser des brûleurs spéciaux sinon ces derniers se dégradent en laitiers avec les sels minéraux (Ranalli A. "The effluent from olive mills: proposals for re-use and purification with reference to Italian legislation. Part II", *Olivae*, 1991, 38, 26-31).

En conclusion on constate que tous les procédés proposés à ce jour sont des procédés compliqués, économiquement onéreux et qui pour certains revêtent d'autres inconvénients différents de ceux des margines initiales.

D'autre part, on sait que l'olive est un fruit particulièrement intéressant en ce sens qu'elle contient de nombreuses espèces moléculaires du type phénol. Ces composés sont réputés pour leurs activités biologiques potentielles comprenant l'activité antioxydante (Visioli F. et Galli C. "Olive oil phenols and their potential effects on human health" J. Agric. Food Chem., 1998, 46, 4292-4296 et "The effect of minor constituents of olive oil on cardiovascular disease: new findings" Nutr. Rev., 1998, 56, 142-147).

Du fait du coefficient de partage huile/eau largement en faveur de la phase aqueuse et des quantités d'eau importantes apportées au milieu, les phénols initialement présents dans l'olive sont retrouvés majoritairement dans les margines et sont ainsi perdus. Dans le tableau 3, on donne, à titre indicatif, la liste des composés phénoliques principaux avec leur concentration selon les travaux de Visioli F., Romani A., Molinacci N., Zarine S., Conte D., Vincieri F. et Galli C. "Antioxidant and other biological activities of olive mill waste waters.", J. Agric. Food Chem., 1999, 47, 3397-3401.

Tableau 3 :

Composé	g/100g de matière sèche
Hydroxytyrosol	1,56
Tyrosol	0,85
Acide élénolique	4,30
Dérives de l'oleuropeine	0,50
Lutéoline 7-Glucoside	0,22
Quercétine	0,13
Dérivés de l'acide cinnamique	0,55
Polyphénols totaux	8,11

Les olives contiennent plus particulièrement deux molécules phénoliques bioactives, le tyrosol et l'hydroxytyrosol. Ces molécules sont des antioxydants dont on connaît l'intérêt pour la santé humaine. Les antioxydants sont en effet reconnus comme des agents piégeant les entités radicalaires à oxygène actif ; ces radicaux libres sont impliqués dans l'étiologie de diverses maladies chez l'homme (Aruoma O. I. "Extracts as antioxydants prophylatic agents" Int. News Fats, Oil Relat. Matter, 1997, 8, 1236-1242). Ces radicaux libres sont également responsables de la dégradation des denrées alimentaires et des produits cosmétiques.

Un problème à la base de l'invention est donc également de fournir un procédé permettant de récupérer et valoriser ces composés biologiquement actifs que sont les composés phénoliques antioxydants des margines.

5 Plus particulièrement, un but de la présente invention est de fournir un procédé permettant de récupérer des composés biologiquement actifs très sensibles du fait de leur susceptibilité à l'oxydation, à la volatilité et/ou à toute autre perturbation altérante contenue dans des solutions aqueuses notamment des extraits aqueux tels que des eaux de végétation  
10 générées pendant la transformation des fruits oléagineux ou non, mais également des extraits aqueux ou hydro-alcooliques, des condensats d'eaux de fruits issues de la concentration des jus de fruits, des perméats de filtration tangentielle de solutions aqueuses diverses.

Un autre but de la présente invention est de fournir un procédé de récupération de composés biologiquement actifs qui soient simples à réaliser et avantageux économiquement.

En effet, très souvent lorsque l'on veut récupérer des composés biologiquement actifs dans ce type d'extraits aqueux, on met en œuvre des procédés de séparation complexes et  
15 coûteux qui engendrent de plus des pertes importantes en composés que l'on voudrait précisément récupérer.

Pour ce faire, la présente invention fournit un procédé de traitement d'un extrait aqueux d'origine végétale contenant des substances organiques d'intérêt, caractérisé en ce qu'on réalise les étapes dans lesquelles :

20 a) on ajoute dans ledit extrait aqueux un biopolymère de nature polysaccharidique (PS) d'origine végétale ou animale, et de préférence un agent émulsifiant, et

b) on soumet le mélange obtenu à un procédé d'atomisation permettant d'obtenir un atomisât sous forme de poudre contenant la totalité de la matière organique ou minérale constitutive de l'extrait sec (ES) dudit extrait aqueux encapsulée au sein d'une matrice  
25 protectrice dudit biopolymère, y compris lesdites substances organiques d'intérêt, lesquelles ne sont pas dégradées.

Plus particulièrement, dans le procédé selon l'invention, à l'étape a), le rapport pondéral dudit biopolymère par rapport audit extrait sec mis en œuvre dans le procédé est compris entre 2 et 8, de préférence entre 3 et 6.

Les inventeurs ont donc découvert qu'il était possible plutôt que de séparer les composés biologiquement actifs directement, de mettre en œuvre un procédé consistant essentiellement à ajouter une charge organique protectrice dans une solution aqueuse en l'espèce, un milieu aqueux d'origine végétale mais qui peut être aussi une émulsion à phase aqueuse continue, puis à atomiser le produit résultant.

Par ce procédé d'atomisation, l'eau est donc évaporée et les composés biologiquement actifs, à savoir les substance organiques d'intérêt se trouvent encapsulées dans une matrice protectrice de biopolymères qui préservent ladite substance organique d'intérêt de toute altération, notamment qui a un effet protecteur contre son oxydation.

Les inventeurs ont également découvert que, non seulement ces composés biologiques sont protégés au sein de la matrice biopolymères par le procédé d'encapsulation selon la présente invention, mais en outre leur teneur est stable au cours du temps.

L'invention est plus particulièrement avantageuse lorsque ladite substance organique d'intérêt est constituée par des composés polyphénoliques à effet antioxydant.

A titre de dits biopolymères, on peut citer les biopolymères polysaccharides choisis parmi maltodextrines, les amidons et les chitosanes.

Le procédé d'encapsulation par atomisation (également connu de l'homme de l'Art sous la dénomination "spray drying") est bien connu de l'homme de l'Art et consiste à emprisonner des substances organiques et minérales constitutives d'extraits secs d'une solution aqueuse dans une matrice polymère en suscitant l'évaporation des solvants d'une dispersion dudit polymère en mélange avec un dit extrait aqueux renfermant lesdites substances. Le procédé consiste à pulvériser le mélange aqueux à atomiser en fines gouttelettes de manière à former un brouillard véhiculé par de l'air chaud, puis à effectuer l'évaporation de l'eau de manière à transformer les gouttelettes en poudre sèche appelée "atomisé".

Le procédé d'atomisation selon l'étape b) de l'invention est particulièrement avantageux car il est simple à réaliser et peu onéreux. D'autre part, les inventeurs ont découvert que, de façon surprenante, les conditions de températures mises en œuvre dans ce type de procédé d'atomisation n'induisent pas la destruction des substance organiques, notamment des polyphénols comme le tyrosol ou l'hydroxyde tyrosol, ou encore l'acide chlorogénique.

En effet, dans un mode de réalisation du procédé d'atomisation selon l'invention, la fourchette de température d'entrée dans l'atomiseur est comprise entre 150 et 250°C et la température de sortie comprise entre 60 et 100°C.

5 Comme mentionné précédemment, dans un mode de réalisation avantageux, ledit extrait aqueux est constitué par la margine issue des eaux de végétation de l'olive et lesdites substances organiques anti-oxydantes comprennent des composés polyphénols consistant dans le tyrosol et l'hydroxytyrosol.

10 Dans un autre mode de réalisation, ledit extrait aqueux choisi parmi les extraits aqueux de grains de café vert, d'artichaut ou de bambou et ledit composé polyphénol est l'acide chlorogénique qui est un autre composé phénolique à haute valeur biologique.

Par exemple, en Éthiopie, le café est consommé traditionnellement sous forme d'infusion de café vert. Or la longévité moyenne est élevée dans ce pays compte-tenu des conditions de vie difficiles des populations. On attribue ce phénomène à l'effet antioxydant des acides chlorogéniques sur les LDL.

15 En ce qui concerne le café, on peut valoriser par le procédé selon l'invention une partie des écarts de café vert. En effet on estime à environ 15% les écarts de tri. Cette fraction est toutefois utilisée pour le café local des pays producteurs alors que la partie noble 85% est exportée vers les pays développés. Ces écarts seraient bien mieux valorisés en réalisant les acides chlorogéniques qu'ils contiennent (teneurs 8 à 11% pour l'*Arabica* et 13 à 16% pour le  
20 *Robusta*).

La présente invention a donc également pour objet, une poudre d'atomisation obtenue par le procédé selon l'invention, caractérisée en ce qu'elle comprend une matrice de dit biopolymère renfermant ladite matière organique ou minérale constitutive dudit extrait sec de l'extrait aqueux et elle comprend une teneur en dite substance organique d'intérêt non dégradé  
25 stable au cours du temps.

Dans le cas de traitement de margines, un moulin traitant 800 kg à l'heure, soit 8 tonnes par jour ou encore 720 tonnes en trois mois, représentant la saison, est susceptible de produire 500 tonnes de margines c'est à dire environ 370 tonnes de poudres stabilisées selon l'invention contenant, par exemple, environ 2 à 3% de polyphénols pour le cas des margines traitées et  
30 utilisables à tout moment dans des formulations diverses.

Ces poudres selon l'invention peuvent constituer des produits alimentaires du type "alicaments" ou "nutraceutiques" ou des produits cosmétiques compte tenu du fait que les substances biologiquement actives conservent, le cas échéant, leur propriété organoleptique du fait de l'effet protecteur des biopolymères d'encapsulation.

5 Les essais réalisés démontrent qu'il est possible, en traitant les margines immédiatement à la sortie de la centrifugeuse, d'encapsuler les polyphénols qu'elles comprennent dans leurs matières sèches et de préserver ainsi ceux-ci de l'oxydation. Compte tenu du débit aléatoire en sortie de la centrifugeuse triphasée, les margines sont de préférence stockées dans une enceinte en acier avec double enveloppe, et le réservoir tampon entre la  
10 centrifugeuse et la tour d'atomisation est maintenu réfrigéré vers 10°C soit sous atmosphère d'azote, soit sous forme d'un réservoir à toit flottant, c'est à dire sans espace de tête.

Le procédé selon l'invention permet également d'encapsuler des acides chlorogéniques sans perte, c'est à dire en conservant une concentration stable dans le temps avec des carbohydrates tels que les amidons, les maltodextrines et les chitosanes

15 Un procédé selon l'invention permet également de traiter des eaux de fruits issues de condensats de concentrations de jus de fruits, mais aussi les extraits aqueux.

Une poudre d'atomisation obtenue par le procédé selon l'invention se caractérise en ce que ladite poudre est très fluide et présente une dispersibilité dans l'eau très homogène. On entend ici par "très fluide" que la poudre se comporte comme un liquide en terme  
20 d'écoulement.

Plus particulièrement, une poudre selon l'invention comprend un pourcentage pondéral de dit biopolymère compris entre 20 et 95 %, de préférence entre 80 et 90 %.

Les produits obtenus selon la présente invention constituent d'excellents produits intermédiaires dans le domaine de l'alimentation ou dans le domaine de la cosmétique, les  
25 substances organiques d'intérêts pouvant être des arômes ou des nutriments.

La présente invention permet donc d'élaborer des produits alimentaires et cosmétiques intermédiaires par atomisation de solutions aqueuses, notamment des eaux de végétation, des extraits, des condensats ou perméats, additionnés d'une charge organique constituée d'un biopolymère, pour la récupération, la stabilisation et la valorisation de substances telles que  
30 des antioxydants mais aussi des arômes ou des micro-nutriments.



D'autres caractéristiques et avantages de la présente invention apparaîtront à la lumière des exemples qui vont suivre.

### **Exemple I**

5 500 ml de margines fraîches contenant 10% de Maltodextrine Glucidex 2B de chez Roquette Frères SA et 2% de caséinate de sodium sont introduits dans un atomiseur Büchi muni d'un nébuliseur à buse à séchage à co-courant (190 minispray drying).

- Temps de traitement : 80 minutes

- Température d'entrée : 160°C

- Température de sortie : 95°C

10 On obtient une poudre très fluide légèrement colorée, dégageant l'arôme d'olive à la température ambiante (15 à 30°C). Cette propriété se conserve dans le temps et la teneur en polyphénols est constante ; celle du tyrosol et de l'hydroxytyrosol est invariable, à condition de conserver le produit dans des emballages étanches.

15 Les analyses réalisées par absorption dans l'U.V. démontrent que les polyphénols présents ne s'oxydent pas.

### **Exemple II**

On réalise une atomisation de margine selon l'exemple I, mais on utilise 10% de Maltodextrine Glucidex 6 de Roquette Frères SA.

On obtient les mêmes résultats que dans l'exemple I.

### **Exemple III**

20 On réalise une atomisation de margine selon l'exemple I, mais on utilise un atomiseur pilote NIRO avec une solution contenant 60% d'amidon soluble de maïs de chez Roquettes Frères SA.

La température du nébuliseur est de 200°C et celle de la sortie 80°C.

25 On obtient des résultats identiques à l'exemple I.

#### Exemple IV

On réalise une atomisation de margine selon l'exemple III, mais avec 50% de Maltodextrine 2B de chez Roquettes Frères SA.

On obtient des résultats identiques à l'exemple I.

#### 5 Exemple V

Un extrait de café commercial a été atomisé en utilisant une charge composée de maltodextrines avec ou sans ajout d'amidon de riz ou de maïs.

10 Les résultats montrent que les acides chlorogéniques résistent bien à l'atomisation ( $T^{\circ}\text{C}$  d'entrée = 180-200°C,  $T^{\circ}\text{C}$  de sortie = 70-80°C) et conservent leurs propriétés antioxydantes (mesurées par le test du 2,2 diphényl-1-picrylhydrazyl (DPPH) (Brand-Williams *et al.*, Lebensm, Wissen Technol., 1995, 28, 25-30).

## REVENDECATIONS

1. Procédé de traitement d'un extrait aqueux d'origine végétale contenant des composés polyphénoliques à effet anti-oxydant, caractérisé en ce qu'on réalise les étapes dans lesquelles :

5 a) on ajoute dans ledit extrait aqueux un biopolymère de nature polysaccharidique (PS) d'origine végétale ou animale, et de préférence un agent émulsifiant, et

b) on soumet le mélange obtenu à un procédé d'atomisation permettant d'obtenir un atomisât sous forme de poudre contenant la totalité de la matière organique ou minérale constitutive de l'extrait sec (ES) dudit extrait aqueux, encapsulée au sein  
10 d'une matrice protectrice dudit biopolymère, y compris lesdits composés polyphénoliques, lesquels ne sont pas dégradés.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que à l'étape a), le rapport pondéral dudit biopolymère par rapport audit extrait sec mis en œuvre dans le  
15 procédé est compris entre 2 et 8, de préférence entre 3 et 6.

3. Procédé selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que, à l'étape b), la fourchette de température d'entrée dans l'atomiseur est comprise entre 150 et 250°C et la température de sortie comprise entre 60 et 100°C.

4. Procédé selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que ledit  
20 biopolymère polysaccharide est choisi parmi les maltodextrines, les amidons et les chitosanes.

5. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que ledit extrait aqueux est constitué par des eaux de végétation de fruits oléagineux.

6. Procédé selon la revendication précédente, caractérisé en ce que ledit  
25 extrait aqueux est constitué par la margine issue des eaux de végétation de l'olive et lesdites substances organiques anti-oxydantes qui comprennent des composés polyphénols consistant dans le tyrosol et l'hydroxytyrosol.

7. Procédé selon l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que ladite substance organique d'intérêt comprend des composés polyphénoliques consistant dans des acides chlorogéniques.

8. Procédé selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que ledit  
5 extrait aqueux choisi parmi les extraits aqueux de grains de café vert, d'artichaut ou de bambou et ledit composé est l'acide chlorogénique.

9. Poudre d'atomisation obtenue par le procédé selon l'une des revendications 1 à 8, caractérisée en ce qu'elle comprend une matrice de dit biopolymère renfermant ladite matière organique ou minérale constitutive dudit extrait  
10 sec de l'extrait aqueux et elle comprend une teneur en dite substance organique d'intérêt non dégradé stable au cours du temps.

10. Poudre d'atomisation selon la revendication 9, caractérisée en ce que ladite poudre est très fluide et présente une dispersibilité dans l'eau très homogène.

11. Poudre selon les revendications 9 et 10, caractérisée en ce qu'elle  
15 comprend un pourcentage pondéral de dit biopolymère compris entre 20 et 95 %, de préférence entre 80 et 90 %.

12. Procédé de préparation d'un produit alimentaire ou cosmétique intermédiaire contenant des composés polyphénols à effet anti-oxydant, caractérisé en ce que l'on traite un extrait aqueux d'origine  
20 végétale par un procédé selon l'une des revendications 1 à 8 et on récupère une poudre d'atomisation selon l'une des revendications 9 à 11.

13. Produit alimentaire ou cosmétique intermédiaire contenant des composés polyphénols à effet anti-oxydant, caractérisé en ce qu'il comprend une poudre d'atomisation selon l'une des revendications 9 à 11.

# RAPPORT DE RECHERCHE

articles L.612-14, L.612-17 et R.612-53 à 69 du code de la propriété intellectuelle

## OBJET DU RAPPORT DE RECHERCHE

---

Après l'accomplissement de la procédure prévue par les textes rappelés ci-dessus, le brevet est délivré. L'Institut National de la Propriété Industrielle n'est pas habilité, sauf dans le cas d'absence **manifeste** de nouveauté, à en refuser la délivrance. La validité d'un brevet relève exclusivement de l'appréciation des tribunaux.

L'I.N.P.I. doit toutefois annexer à chaque brevet un "RAPPORT DE RECHERCHE" citant les éléments de l'état de la technique qui peuvent être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention. Ce rapport porte sur les revendications figurant au brevet qui définissent l'objet de l'invention et délimitent l'étendue de la protection.

Après délivrance, l'I.N.P.I. peut, à la requête de toute personne intéressée, formuler un "AVIS DOCUMENTAIRE" sur la base des documents cités dans ce rapport de recherche et de tout autre document que le requérant souhaite voir prendre en considération.

## CONDITIONS D'ÉTABLISSEMENT DU PRÉSENT RAPPORT DE RECHERCHE

---

- ☒ Le demandeur a présenté des observations en réponse au rapport de recherche préliminaire.
- ☐ Le demandeur a maintenu les revendications.
- ☒ Le demandeur a modifié les revendications.
- ☐ Le demandeur a modifié la description pour en éliminer les éléments qui n' étaient plus en concordance avec les nouvelles revendications.
- ☐ Les tiers ont présenté des observations après publication du rapport de recherche préliminaire.
- ☐ Un rapport de recherche préliminaire complémentaire a été établi.

## DOCUMENTS CITÉS DANS LE PRÉSENT RAPPORT DE RECHERCHE

---

La répartition des documents entre les rubriques 1, 2 et 3 tient compte, le cas échéant, des revendications déposées en dernier lieu et/ou des observations présentées.

- ☒ Les documents énumérés à la rubrique 1 ci-après sont susceptibles d'être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention.
- ☒ Les documents énumérés à la rubrique 2 ci-après illustrent l'arrière-plan technologique général.
- ☐ Les documents énumérés à la rubrique 3 ci-après ont été cités en cours de procédure, mais leur pertinence dépend de la validité des priorités revendiquées.
- ☐ Aucun document n'a été cité en cours de procédure.

1.ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE SUSCEPTIBLES D'ETRE PRIS EN CONSIDERATION POUR APPRECIER LA BREVETABILITE DE L'INVENTION	
Référence des documents (avec indication, le cas échéant, des parties pertinentes)	Revendications du brevet concernées
FR 2 624 737 A (LABORATOIRES NATURA MEDICA) 23 juin 1989 (1989-06-23) * le document en entier *	1,3,4,9
2.ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE ILLUSTRANT L'ARRIERE-PLAN TECHNOLOGIQUE GENERAL	
DE 37 20 408 A (P.HUSSMANN) 29 décembre 1988 (1988-12-29)	
EP 1 103 192 A (QUEST INTERNATIONAL) 30 mai 2001 (2001-05-30)	
WO 00 64282 A (TORTORA) 2 novembre 2000 (2000-11-02)	
3. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE DONT LA PERTINENCE DEPEND DE LA VALIDITE DES PRIORITES	
Référence des documents (avec indication, le cas échéant, des parties pertinentes)	Revendications du brevet concernées
NEANT	